

Title	遍歴反強磁性体 BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) の異常な巨大磁気抵抗効果
Author(s)	木田, 孝則; 萩原, 政幸
Citation	大阪大学低温センターだより. 171 p.9-p.12
Issue Date	2021-01
oaire:version	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/81810
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

遍歴反強磁性体 BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) の 異常な巨大磁気抵抗効果

理学研究科附属先端強磁場科学研究センター 木田孝則*, 萩原政幸 (*内線: 6687)

1. はじめに

重い電子系化合物の CeCu_2Si_2 や鉄ニクタイド超伝導体の母物質である BaFe_2As_2 に代表されるように, ThCr_2Si_2 (122) 型の正方晶系の結晶構造をもつ物質はその磁性や輸送特性において興味深い物性を示すことが多いことから広く研究されている。本稿で取り上げる Mn ニクタイド BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) もその一つであり, 図1に示すように Mn^{2+} ($S = 5/2$) サイトの磁気モーメントがチェッカーボード型に配列した, いわゆる G 型の反強磁性秩序 (ネール温度は $\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$ でそれぞれ $T_N = 625, 443, 400$ K) を示す[1-3]。従って, BaMn_2Pn_2 では空間反転対称性 (Space Inversion Symmetry: SI) と時間反転対称性 (Time Reversal Symmetry: TR) が同時に破れている。近年の物性物理学において, 空間反転 (パリティ) 対称性と時間反転対称性を結合させた PT (= SI \times TR) 対称性および広義の意味での多極子秩序による物質の統一的理解が試みられている[4]が, その観点からすると BaMn_2Pn_2 は PT 対称性が保持されており, 磁気モーメントが z 方向を向いていることから, 磁気十六極子が主要成分である「奇パリティ磁気多極子物質」に分類される[5]。このような物質群では, 電流を流すことによって弾性歪みが生じる磁気圧電効果[6]などの創発電磁応答や非相反応[7]が期待され, 盛んに研究がなされている。本稿では, 奇パリティ磁気多極子秩序をもつ BaMn_2Pn_2 で観測された特異な磁気輸送特性について紹介する。

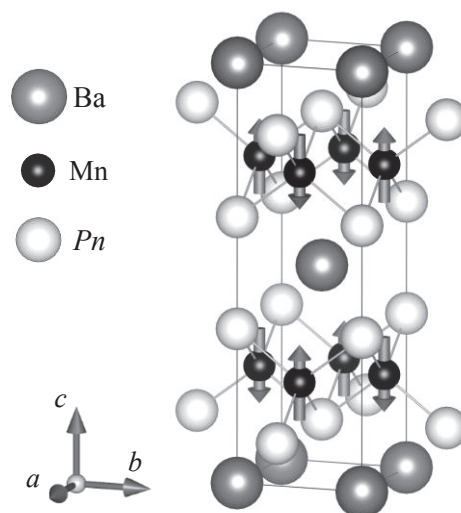


図1. BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) の結晶構造と磁気構造。

2. 実験方法

BaMn_2Pn_2 の単結晶試料は, $\text{Pn} = \text{As}$ では MnAs を, $\text{Pn} = \text{Sb}, \text{Bi}$ では過剰なニクトゲン原材料を用いた自己フラックス法により合成された[8-10]。構造解析と化学分析はそれぞれ X 線回折 (XRD) とエネルギー分散型 X 線分析 (EDX) で行い, ほぼ化学量論比組成の単結晶試料であることを確認した。電気抵抗測定は, 従来の DC/AC 四端子法および DC 二端子法により $T = 1.4 \sim 300$ K の温度範囲で行った。磁場の発生には, 東北大学金属材料研究所の超伝導マグネット (最大磁場: 18 T) と我々の所有する非破壊型パルスマグネット (最大磁場: 55 T, パルス幅: 約 35 msec) を用いた。磁気抵抗の角度依存性測定は, 9 T までの定常磁場下では PPMS (カンタムデザイン社製) の試料回

転オプションを使用し、パルス強磁場下では最大磁場40 Tのワイドボアパルスマグネット（パルス幅：約40 msec）とPEEK樹脂製の差動ギア式二軸回転機構[11]を使用して行った。

3. 結果と考察

図2(a)に BaMn_2Pn_2 の電気抵抗率の温度依存性を示す。いずれの試料も室温では金属的な伝導を示すが、 T_{\min} で金属-絶縁体 (MI) 転移が生じ、さらに低温の T^* で本物質系の多数キャリアである正孔の移動度の減少に起因すると考えられる別の異常も観測される。本稿では示さないが、 T_{\min} 近傍で比熱や磁化率に目立った変化はなく、 $T^* < T < T_N$ の温度領域で正孔のキャリア密度が一定であることを考慮すると、このMI転移はキャリアの散乱機構の温度依存性が重要であり、これらの物質の電子状態が温度低下とともに遍歴的から局在的へと移り変わっていることが示唆される。図2(b)に $T = 4.2 \text{ K}$, $j \parallel H \parallel [100]$ の磁気抵抗の結果を示す。類似物質の BaFe_2As_2 がマルチキャリア系ディラックバンドを反映した線形の正の磁気抵抗を示すこと[12]と大きく異なり、 BaMn_2Pn_2 では磁場の上昇とともに正から負へと符号反転する巨大な磁気抵抗が共通して観測された。驚くべきことに、 $\text{Pn} = \text{As}, \text{Bi}$ の試料では強磁場で磁気抵抗比 ($\Delta \rho / \rho_0 = \rho(H) / \rho(0) - 1$) が -98% に達している。この負の磁気抵抗は、

磁場印加による低温絶縁体相から高温金属相へのリエントラントな絶縁体-金属転移現象と捉えることもできる。磁気抵抗の大きさがニクトゲン (Pn) の種類に大きく依存していることから、スピン-軌道相互作用およびMnの3d軌道とPnのp軌道との間のp-d混成軌道の形成がこの巨大磁気抵抗の発現に深く関わっていると考えられる。

図3に BaMn_2Bi_2 の面内磁気抵抗の磁場方位依存性の結果を示す。電流は[100]方向に印加し、電流と磁場の向きのなす角度としてac面内で[100]から[001]へ向かう方位角を θ , ab面内で[100]から[010]へ向かう方位角を ϕ と定義した。磁気抵抗の大きさは、磁場がab面内にある場合は方向に依らず最大となり、ab面に垂直な場合に最小となる異方性を示した。 BaMn_2Pn_2 の磁気抵抗は、反強磁性スピンの配向方向に対して垂直な磁場を印加した場合に顕著に観測され、一般的な磁気抵

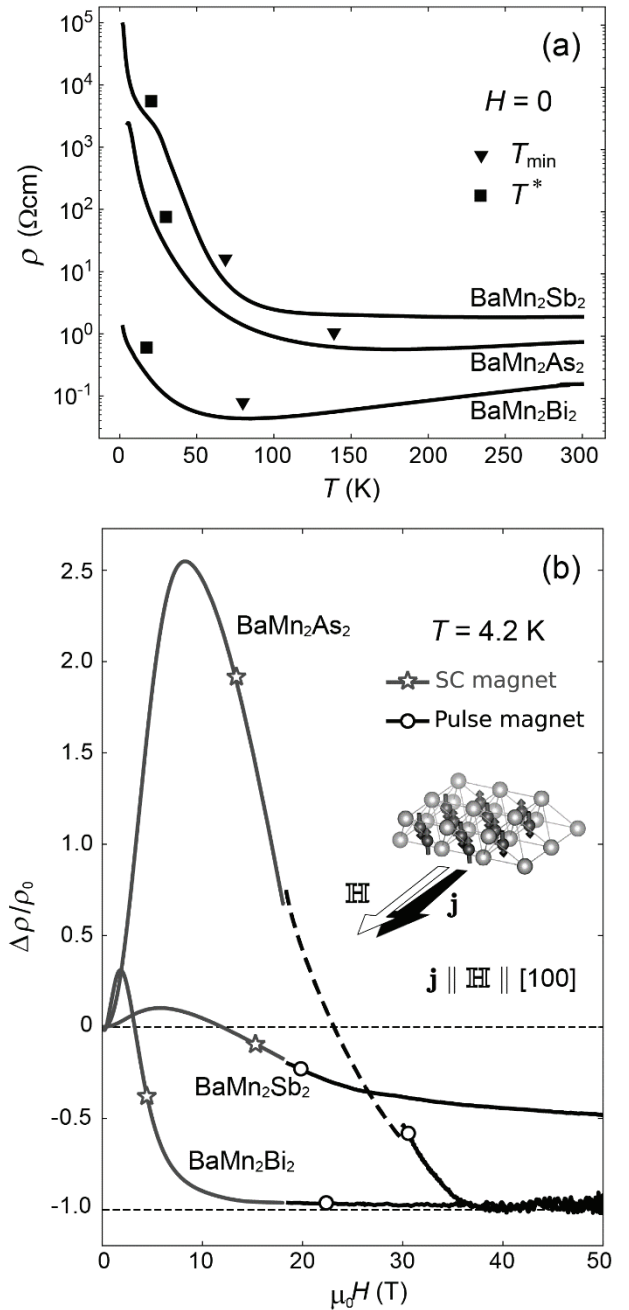


図2. BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) の (a) 電気抵抗率と (b) 強磁場磁気抵抗 [8].

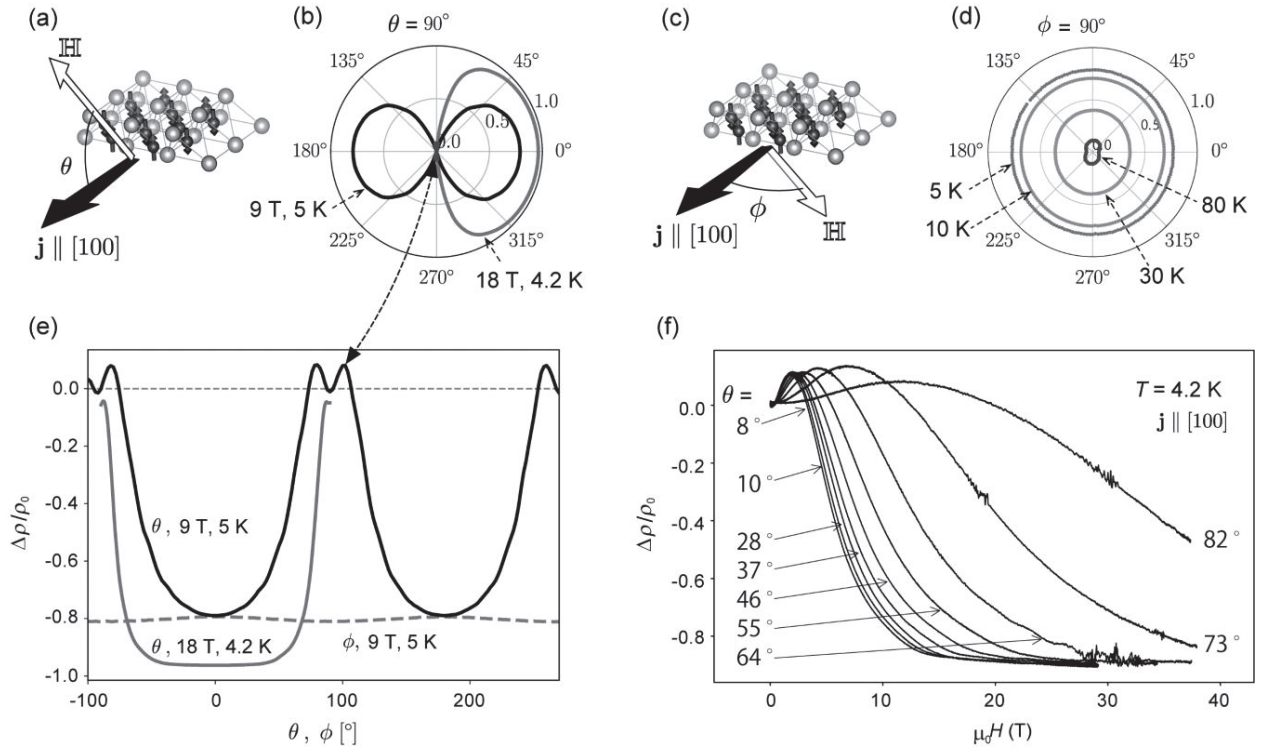


図3. (a) ac 面内での電流と磁場の向きのなす方位角 (θ) の関係, (b) 磁気抵抗の θ 依存性のポーラプロット, (c) ab 面内での電流と磁場の向きのなす方位角 (ϕ) の関係, (d) 磁気抵抗の ϕ 依存性のポーラプロット, (e),(f) BaMn_2Bi_2 の面内磁気抵抗の磁場方位依存性[8,10].

抗とは異なる対称性を有している。Hall効果測定[8]、バンド計算[13]および角度分解光電子分光 (ARPES) 測定[14]の結果によると、 BaMn_2Pn_2 の磁気輸送現象に関わる主要な遍歴キャリアは、 Mn の $3d$ 軌道と Pn の p 軌道で構成される p - d 混成軌道の価電子帯に占有された非常に少数の正孔である。 T_N より温度が下がっていくと、 xy , yz , z^2 軌道に存在するキャリアは電子相関のために反強磁性相互作用を受けたPT対称性を有する基底秩序状態へと近づいていく。しかし、高温領域 ($T_{\min} < T < T_N$) の有限温度では、電子スピンの配向に熱揺らぎが存在しており、観測量としての磁気モーメントは温度平均値としての有限な値をとる。温度が T_N から十分に離れた低温領域では、熱揺らぎが抑えられ反強磁性的にスピン配向した基底状態へと遷移する。低温で実現される基底状態はPT対称性を有しているために、遍歴状態と局在状態が拮抗するバンド端近傍で電子干渉によるアンダーソン局在に似た電子の局在化が顕在化すると考えられる。一方、磁場をスピン配向と垂直に印加すると、磁場のエネルギーのためにスピン配向は、 $\mu_B H \sim k_B T$ の関係で高温領域の金属状態へとリエントラントに戻ることが可能となる。対称性の観点からすると、磁場による時間反転対称性の破れのために電子干渉による局在性が抑制され、遍歴性が復活したりエントラント金属状態が安定化すると考えられる。

4. まとめ

本研究ではPT対称性を有する遍歴反強磁体の Mn ニクタイド BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn} = \text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$) の強磁場輸送現象について調べた。本物質群では、低温で正から負へと変化する磁場誘起リエントラント金属化による巨大磁気抵抗が観測された。この磁気抵抗は従来の物質では報告されてい

い磁場対称性を示しており，PT対称性の観点からすると，スピン-軌道相互作用に起因する「奇パリティ磁気多極子秩序」が波数空間の非自明な変形を誘起し， p - d 混成価電子バンドに遍歴性が生じた結果であると解釈できる。

謝辞

本研究は東北大学材料科学高等研究所の谷垣勝己教授，K.-K. Huynh 博士，松下ステファン悠博士，同大学大学院理研究科の小笠原拓磨氏および本学大学院理学研究科の田原学大夢氏との共同研究による成果である。パルス強磁場実験については，東京大学物性研究所の共同利用制度を利用して，本学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センターで実施された。最後に、平素よりヘリウム液化業務および寒剤の安定供給ご尽力頂いてる低温センター職員の皆様に感謝致します。

参考文献

- [1] Y. Singh *et al.*, Phys. Rev. B **80**, 100403 (R) (2009).
- [2] J. An *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 075120 (2009).
- [3] B. Sapiro and A. S. Sefat, J. Solid State Chem. **204**, 32 (2013).
- [4] S. Hayami. *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 165110 (2018).
- [5] H. Watanabe and Y. Kusunose, Phys. Rev. B **96**, 064432 (2017).
- [6] Y. Shiomi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 127207 (2019).
- [7] P. Wadley *et al.*, Science **351**, (2016).
- [8] K.-K. Huynh *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 195111 (2019).
- [9] K.-K. Huynh *et al.*, New J. Phys. **16**, 093062 (2014).
- [10] T. Ogasawara *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 125108 (2021).
- [11] T. Kida *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, SB067 (2012).
- [12] K.-K. Huynh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 217004 (2011).
- [13] J. An. An *et al.*, Phys. Rev. B **79**, 075120 (2009).
- [14] W. -L. Zhang *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 155155 (2016).